



日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年 9月28日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第273753号

出 願 人

Applicant (s):

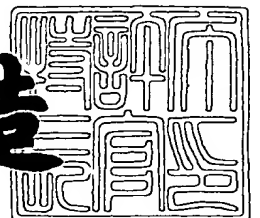
信越石英株式会社

RECEIVED  
JAN 17 2001  
TC 1700 MAIL ROOM

2000年12月 1日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3097535

【書類名】 特許願

【整理番号】 PH0155

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C01B 33/18  
C03C 3/06

【発明者】

【住所又は居所】 福島県郡山市田村町金屋字川久保 8 8 番地 信越石英株式会社 石英技術研究所 内

【氏名】 松井 宏

【発明者】

【住所又は居所】 福島県郡山市田村町金屋字川久保 8 8 番地 信越石英株式会社 石英技術研究所 内

【氏名】 星川 佳寿美

【特許出願人】

【識別番号】 000190138

【氏名又は名称】 信越石英 株式会社

【代表者】 松▲ざき▼ 浩

【代理人】

【識別番号】 100101960

【弁理士】

【氏名又は名称】 服部 平八

【電話番号】 03-3357-2197

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 027432

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

特平 1 1 - 2 7 3 7 5 3

【包括委任状番号】 9703820

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 合成石英ガラス粉の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 シリカゲル粉末を焼成し透明ガラス化する合成石英ガラス粉の製造方法において、前記シリカゲル粉末をヘリウムガスの供給でバブリング流動させ、1300～1600℃の温度で焼成することを特徴とする合成石英ガラス粉の製造方法。

【請求項 2】 シリカゲル粉末が炭素原子を有しない珪素化合物を加水分解して得たヒュームドシリカを純水中に分散し固形分濃度50～80重量%のスラリーとし、pH値を1～4に調製し、攪拌しながら80～150℃に加温した清浄なガスを20時間以上供給し、水分含有量を20重量%以下に乾燥し、分級して得たドライシリカゲル粉末を酸素を含む雰囲気中、150～300℃で熱処理し、次いで600～1100℃の熱処理及び塩化水素を含む雰囲気中、1100～1300℃での熱処理を施して形成したものであることを特徴とする請求項 1 記載の合成石英ガラス粉の製造方法。

【請求項 3】 シリカゲル粉末の粒径が50～800  $\mu\text{m}$ の範囲にあることを特徴とする請求項 1 記載の合成石英ガラス粉の製造方法。

【請求項 4】 ヘリウムガスが少なくとも600℃に加熱されたのち供給されることを特徴とする請求項 1 記載の合成石英ガラス粉の製造方法。

【請求項 5】 ヘリウムガスが循環して使用されることを特徴とする請求項 1 記載の合成石英ガラス粉の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】

本発明は、合成石英ガラス粉の製造方法に関し、詳しくはシリカゲル粉をバブリング流動させながら焼成する合成石英ガラス粉の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来技術】

従来、合成石英ガラス粉は、四塩化珪素の酸水素炎中で加水分解し得たシリカ微粉を堆積させ粉碎したのち焼成するスート法、シリコンアルコキシドを加水分解・ゲル化したのち粉碎し、炭素除去等の純化处理を施したのち焼成するゾルゲル法等で製造されていた。そして前記シリカゲル粉末の焼成には石英ガラス製ルツボなどが用いられ、それにシリカゲル粉末を入れ加熱するのが一般的である。しかし、この焼成法では粉体同士が融着し、それを粉碎することから不純物が混入し十分満足できる高純度の合成石英ガラス粉が得られない欠点があった。

【 0 0 0 3 】

【発明が解決しようとする課題】

こうした現状に鑑み、本発明者等は鋭意研究を続けた結果、シリカゲル粉末をヘリウムガスでバブリング流動させながら、1300～1600℃の温度で焼成することで粉碎工程を経ることなく高純度で、かつ無気泡の合成石英ガラス粉が得られることを見出して、本発明を完成したものである。すなわち、

【 0 0 0 4 】

本発明は、高純度、高品質の合成石英ガラス粉の製造方法を提供することを目的とする。

【 0 0 0 5 】

また、本発明は、合成石英ガラスの製造時に発生する大量の副生物を利用できる高純度、高品質の合成石英ガラス粉の製造方法を提供することを目的とする。

【 0 0 0 6 】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成する本発明は、シリカゲル粉末を焼成し透明ガラス化する合成石英ガラス粉の製造方法において、前記シリカゲル粉末をヘリウムガスの供給でバブリング流動させ、1300～1600℃の温度で焼成することを特徴とする合成石英ガラス粉の製造方法に係る。

【 0 0 0 7 】

上記シリカゲル粉とは、(イ)分子内に炭素原子を含まない珪素化合物、例えば四塩化珪素、六塩化二珪素などを加水分解して得たヒュームドシリカを純水中に分散し、固形分濃度50～80重量%のスラリーとし、鉱酸を添加してpH値

を1～4に調整し、攪拌しながら80～150℃に加温された清浄なガスを供給し乾燥し、分級して粒径50～800 $\mu$ mの粉末とし、それを酸素を含む雰囲気中で150～300℃の温度範囲で熱処理して水分の作用で付着する微粉を系外に排出するとともに、残留する水分を完全に除去し、さらに、600～1100℃の温度範囲で熱処理し、有機物や可燃物を酸化除去したのち、塩化水素を含むフロー雰囲気中で1100～1300℃の熱処理を行い、含有する微量な金属不純物を塩化物として取り除く方法（以下シリカ微粒子法という）で形成したシリカゲル粉末、又は（ロ）高純度のアルコキシシランを水と反応させ湿潤状態のゲル体を得、それを乾燥したのち粉碎し、炭素成分除去等の純化处理を施すゾルゲル法で形成したシリカゲル粉末をいう。特にシリカ微粒子法で形成したシリカゲル粉末は、原料が炭素フリーで残留炭素成分がなく、またバルク体を粉碎することなく形成され、高純度である上に、合成石英ガラスの製造時に発生する大量の珪酸ダストを原料として利用でき製造コストを低くできて好ましい。

## 【0008】

本発明の合成石英ガラス粉の製造方法では、上記シリカゲル粉末を耐熱性の流動加熱槽に入れ、これを電気炉内に設置し、ヘリウムガスを導入しバブリング流動させながら、1300～1600℃に加熱・焼成するが、使用する流動加熱槽は高純度の石英ガラス製又はセラミック製がよい。より好ましくは縦型で下部に多数のガス貫通孔を有するガス分散板を設けた石英ガラス製縦型流動加熱槽がよい。前記流動加熱槽内に導入されるシリカゲル粉末はその粒径が50～800 $\mu$ mの範囲とし、導入するガスはヘリウムガスがよい。粒径が前記範囲未満では流動が激しく処理粉が溢れ処理効率が低下し、粒径が前記範囲を超えると流動が十分でなく均一な焼成が困難である。また、ガスはヘリウムガス以外はシリカゲル粉末中に残留し気泡の原因となり好ましくない。

## 【0009】

上記流動加熱槽は電気炉内に設置され外周より1300～1600℃に加熱されるが、静置式で製造する場合には粉同士の融着が起こるため1450℃以下の温度範囲が選ばれるが、流動加熱槽を使用する場合にはより高温で焼成できるためより緻密な石英ガラス粉を得ることができる。しかし、シリカ微粒子法により

得たシリカゲル粉末であっても 1 6 0 0 °C を超えると石英ガラス粉の軟化及び石英ガラス製流動加熱槽への融着が起こり好ましくない。

【 0 0 1 0 】

上述のように本発明の合成石英ガラス粉の製造方法ではシリカゲル粉末をバブリング流動させながら、昇温が開始されるので、槽内のシリカゲル粉末は均一に加熱焼成され、緻密な透明の石英ガラス粉が融着することなく得られる。この製造方法において導入されるヘリウムガスを予め 1 0 0 0 °C 以上に加熱したのち導入すると熱効率が一段と向上する。さらに、ヘリウムガスを循環し使用することで製造コストを一層低下させることができる。

【 0 0 1 1 】

【発明の実施の形態】

次に本発明の実施例について述べるがこれによって本発明はなんら限定されるものではない。

【 0 0 1 2 】

【実施例】

実施例 1

(ドライシリカゲル粉末の作成)

高純度の四塩化珪素を火炎加水分解してヒュームドシリカを発生させ排気口より排気するヒュームドシリカをバグフィルターにて回収し 1 4 0 k g のヒュームドシリカを得た。

【 0 0 1 3 】

内側及び攪拌羽根をポリウレタン樹脂で被覆した攪拌機を用意し、純水 7 5 リットルを入れ攪拌羽根を回転させながらヒュームドシリカを徐々に投入して 6 5 重量%のスラリーを作成した。このスラリーに半導体グレードの塩酸 2 0 0 c m<sup>3</sup>を添加し約 3 0 分間攪拌を続けて安定させた。前記スラリーを内部がポリウレタン樹脂で被覆された直径約 1 m の容器であって、石英ガラス製の攪拌治具及びスクレイパーが設置されている容器内に投入し攪拌治具及び攪拌容器を回転させ、1 5 0 °C に加温した乾燥クリーンエアーを 5 m<sup>3</sup>/分の流量で供給しながら、3 0 時間乾燥を続けた。スラリーは 8 時間で糊状となり、1 6 時間後には水分を

20%程度含みながらも粒状となった。30時間後には水分含有量が0.6重量%となった。次いで分級し180~500 $\mu$ mの粉末70kgを採取した。得られたシリカゲル粉末は略球形で均質であり気孔容積が0.307cm<sup>3</sup>/g、平均気孔径が11.2nmであった。

## 【0014】

## (熱処理)

前記シリカゲル粉末をロータリーキルンに流し、200℃で酸素フロー150cm<sup>3</sup>/分下で酸化処理を行い、同様な条件で温度を800℃にして熱処理を実施したのち、1200℃に昇温して塩化水素フロー150cm<sup>3</sup>/分の条件で熱処理を実施した。処理速度は10kg/時で炉内の通過時間は約40分であった。

## 【0015】

## (焼成)

上記熱処理したシリカゲル粉末を図1に示すフローシートに従って焼成した。図1において、1は縦型流動加熱槽、2はガス分散板、3はヒーター、4はヘリウムガス貯蔵ボンベ、5はガス流量計、6はガス圧力計、7はガス加熱炉、8は粉充填層である。シリカゲル粉末は縦型流動加熱槽1に入れられ、縦型電気炉内に配設され外周よりカーボン抵抗式ヒーターで加熱される。加熱開始当初から縦型流動加熱槽下部からヘリウムガスが30リットル/分で供給され、シリカゲル粉末はバブリング流動する。前記ヘリウムガスはシリカゲル粉末の温度が1000℃に達した時点でガス加熱炉7で1000℃に加熱され供給された。縦型流動加熱槽の温度は室温から1200℃までは20℃/分で昇温しさらに1550℃まで20℃/分で昇温し、1550℃10時間保持したのち自然冷却した。

## 【0016】

炉から取り出された合成石英ガラス粉は完全に透明となっており、粉同士の融着がほとんどなく、粉状のまま焼成されていた。この透明石英ガラス粉には気孔が検出されず真比重は2.18であった。この合成石英ガラス粉を真空溶融して石英ガラス棒及びブロック材を製造したところ、石英ガラス棒及びブロック材には気泡や異物等の発生がなく、さらに1600℃で真空加熱しても気泡の膨張等



が見られなかった。

【 0 0 1 7 】

【発明の効果】

本発明の合成石英ガラスの製造方法では、高純度、高品質の合成石英ガラス粉が融着することなく粉状のまま焼成され、それを溶融ガラス化することで、気泡や異物等の発生がない合成石英ガラスが得られる。しかも、製造方法は合成石英ガラスの製造時に生じる副生物を原料として利用でき、工業的価値の高い方法である。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

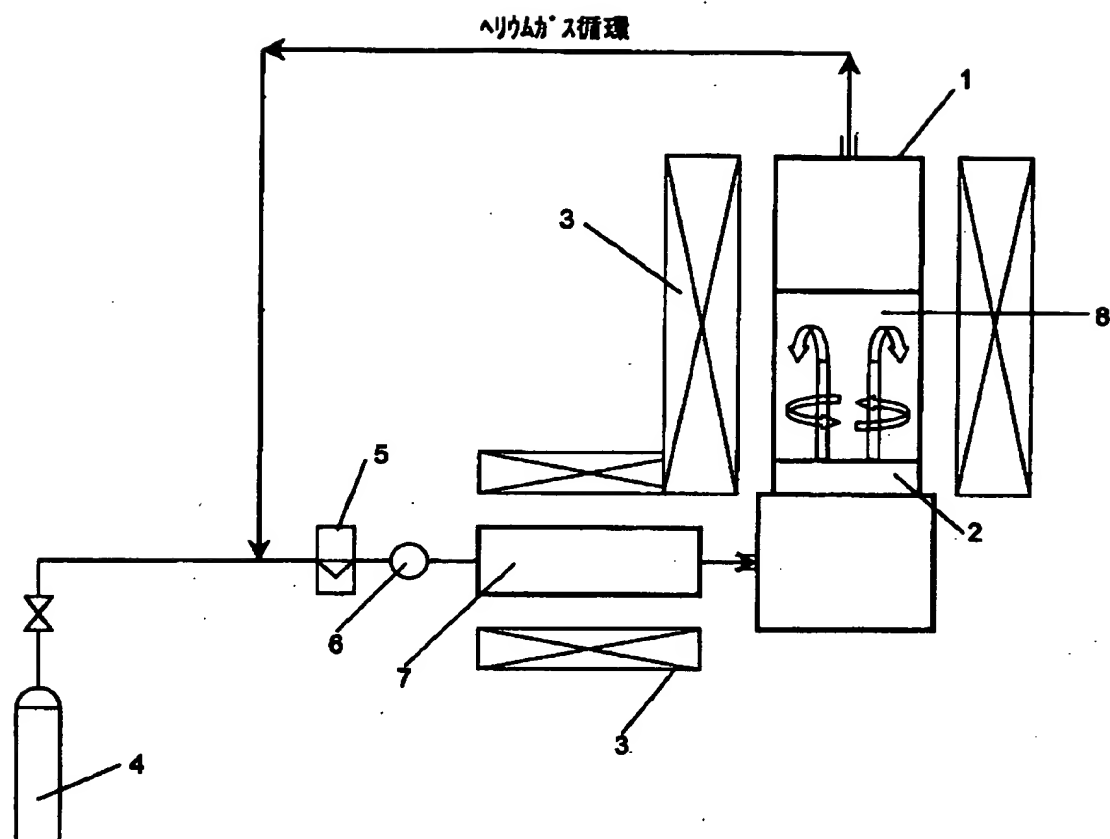
実施例 1 の合成石英ガラス粉の製造方法のフローシートである。

【符号の説明】

- 1 : 縦型流動加熱槽
- 2 : ガス分散板
- 3 : ヒーター
- 4 : ヘリウムガス貯蔵ボンベ
- 5 : ガス流量計
- 6 : ガス圧力計
- 7 : ガス加熱炉
- 8 : 粉充填層

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【目的】融着することなく粉状のまま焼成できる高純度、高品質の合成石英ガラス粉の製造方法を提供すること。

【解決手段】シリカゲル粉末を焼成し透明ガラス化する合成石英ガラス粉の製造方法において、前記シリカゲル粉末をヘリウムガスの供給でバブリング流動させ、1000～1600℃の温度で焼成することを特徴とする合成石英ガラス粉の製造方法。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	平成11年 特許願 第273753号
受付番号	59900941197
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成11年 9月30日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成11年 9月28日
-------	-------------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000190138]

1. 変更年月日	1990年 8月 8日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都新宿区西新宿1丁目22番2号
氏 名	信越石英株式会社